

特許協力条約

PCT

特許性に関する国際予備報告（特許協力条約第二章）

（法第 12 条、法施行規則第 56 条）
〔PCT36 条及び PCT 規則 70〕

出願人又は代理人 の書類記号 04-F-046PCT	今後の手続きについては、様式 PCT/IPEA/416 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP2004/014878	国際出願日 (日.月.年) 01.10.2004	優先日 (日.月.年) 03.10.2003
国際特許分類 (IPC) Int.Cl. C01B31/02(2006.01)		
出願人 (氏名又は名称) 独立行政法人物質・材料研究機構		

<p>1. この報告書は、PCT35 条に基づきこの国際予備審査機関で作成された国際予備審査報告である。 法施行規則第 57 条 (PCT36 条) の規定に従い送付する。</p> <p>2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。</p> <p>3. この報告には次の附属物件も添付されている。</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> 附属書類は全部で <u>5</u> ページである。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関が認めた訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面の用紙 (PCT 規則 70.16 及び実施細則第 607 号参照)</p> <p><input type="checkbox"/> 第 I 欄 4. 及び補充欄に示したように、出願時における国際出願の開示の範囲を超えた補正を含むものとこの国際予備審査機関が認定した差替え用紙</p> <p>b. <input type="checkbox"/> 電子媒体は全部で _____ (電子媒体の種類、数を示す)。 配列表に関する補充欄に示すように、電子形式による配列表又は配列表に関連するテーブルを含む。 (実施細則第 802 号参照)</p>	
<p>4. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 I 欄 国際予備審査報告の基礎</p> <p><input type="checkbox"/> 第 II 欄 優先権</p> <p><input type="checkbox"/> 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成</p> <p><input type="checkbox"/> 第 IV 欄 発明の単一性の欠如</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> 第 V 欄 PCT35 条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VI 欄 ある種の引用文献</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VII 欄 国際出願の不備</p> <p><input type="checkbox"/> 第 VIII 欄 国際出願に対する意見</p>	

国際予備審査の請求書を受理した日 28.04.2005	国際予備審査報告を作成した日 17.01.2006	
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号	特許庁審査官 (権限のある職員) 廣野 知子	4G 9266 電話番号 03-3581-1101 内線 3416

様式 PCT/IPEA/409 (表紙) (2005 年 4 月)

第 I 欄 報告の基礎

1. 言語に関し、この予備審査報告は以下のものを基礎とした。

- ☒ 出願時の言語による国際出願
☐ 出願時の言語から次の目的のための言語である _____ 語に翻訳された、この国際出願の翻訳文
☐ 国際調査 (PCT規則12.3(a)及び23.1(b))
☐ 国際公開 (PCT規則12.4(a))
☐ 国際予備審査 (PCT規則55.2(a)又は55.3(a))

2. この報告は下記の出願書類を基礎とした。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に応答するために提出された差替え用紙は、この報告において「出願時」とし、この報告に添付していない。)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書

第 1, 4 _____ ページ、出願時に提出されたもの

第 5-6 _____ ページ*, 28.04.2005 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 2-3 _____ ページ*, 26.12.2005 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 請求の範囲

第 2 _____ 項、出願時に提出されたもの

第 _____ 項*, PCT19条の規定に基づき補正されたもの

第 3, 5 _____ 項*, 28.04.2005 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 1 _____ 項*, 26.12.2005 付で国際予備審査機関が受理したもの

☒ 図面

第 1-4 _____ 図、出願時に提出されたもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

第 _____ ページ/図*, _____ 付で国際予備審査機関が受理したもの

☐ 配列表又は関連するテーブル

配列表に関する補充欄を参照すること。

3. ☒ 補正により、下記書類が削除された。

☐ 明細書 第 _____ ページ

☒ 請求の範囲 第 4, 6 _____ 項

☐ 図面 第 _____ ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

4. ☐ この報告は、補充欄に示したように、この報告に添付されかつ以下に示した補正が出願時における開示の範囲を超えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c))

☐ 明細書 第 _____ ページ

☐ 請求の範囲 第 _____ 項

☐ 図面 第 _____ ページ/図

☐ 配列表 (具体的に記載すること) _____

☐ 配列表に関連するテーブル (具体的に記載すること) _____

* 4. に該当する場合、その用紙に "superseded" と記入されることがある。

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲 1-3, 5	有
	請求の範囲	無
進歩性 (IS)	請求の範囲 1-3, 5	有
	請求の範囲	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲 1-3, 5	有
	請求の範囲	無

2. 文献及び説明 (PCT規則 70.7)

請求の範囲 1-3, 5 に記載された発明は、国際調査報告書において引用したいずれの文献にも「フラーレンのウイスキーまたはファイバーを 1 Pa の真空中において 500~1000℃の温度範囲で熱処理してなる、非晶質炭素壁を持ち内部が中空で、直径 10 nm~100 μm、長さ 100 nm 以上であるフラーレンシェルチューブ」が記載されておらず、当業者にとっても自明なものでもない。

が想定される。しかしながら、これまで、フラーレンの結晶を熱処理することによってフラーレンシエルが生成されることは知られているが、チューブ状のフラーレンシエル（以後、フラーレンシエルチューブと称す）やこのものを得るための方法はこれまで全く知られていない。

特許文献 1 : 特開 2 0 0 3 - 1 6 0 0 号

非特許文献 1 : H. Sakuma, M. Tachibana, H. Sugiura, K. Kojima, S. Ito, T. Sekiguchi, Y. Achiba, J. Mater. Res., 12 (1997) 154 5.

非特許文献 2 : K. Miyazawa, Y. Kuwasaki, A. Obayashi and M. Kuwabara, " C 60 nanowhiskers formed by the liquid-liquid interfacial precipitation method" , J. Mater. Res., 17 [1] (2002) 83.

非特許文献 3 : Kun'ichi Miyazawa " C70 Nanowhiskers Fabricated by Forming Liquid /Liquid Interfaces in the Systems of Toluene Solution of C70 and Isopropyl Alcohol" , J. Am. Ceram. Soc., 85 [5] (2002) 1297.

フラーレンシエルチューブは構造的に見ても水素吸蔵体、触媒担体、新規半導体、電界放射材料、燃料電池電極材料などの用途に使用できるものとして期待されるが、前記のとおり、フラーレンシエルチューブを製造するための方法やこのフラーレンシエルチューブ構造についての様々な可能性については知られていないのが実情である。

そこで、この出願の発明は新しい機能性材料として期待されるフラーレンシエルチューブとその製造方法を提供することを課題としている。

発明の開示

この出願の発明は、上記の課題を解決するものとして、第 1.には、フラーレンのウィスカーまたはファイバーを 1 P a の真空中において 5 0 0 ~ 1 0 0 0 ℃ の温度範囲で熱処理して、非晶質炭素壁を持ち内部が中空であるフラーレンシエルチューブとすることを特徴とするフラー

レンシエルチューブの製造方法を提供する。

第2には、フラーレンが C_{60} フラーレン、 C_{70} 以上の高次フラーレン、金属内包フラーレン、またはフラーレン誘導体である上記のフラーレンシエルチューブの製造方法を提供する。

また、この出願の発明は、第3には、直径が $10\text{ nm} \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ の範囲、長さが 100 nm 以上であって、チューブ壁が非晶質炭素であり、内部が中空であることを特徴とするフラーレンシエルチューブを提供する。

第4には、チューブの端部が閉鎖または開口している上記のフラーレンシエルチューブを提供する。

図面の簡単な説明

図1は、フラーレンナノウィスカーを 600°C で、30分間、真空中で加熱することによって作製したフラーレンシエルチューブの透過電子顕微鏡 (TEM) 写真である。

図2は、フラーレンナノウィスカーを 700°C で、30分間、真空中で加熱することによって作製したフラーレンシエルチューブの透過電子顕微鏡 (TEM) 写真である。

図3は、フラーレンナノウィスカーを 600°C で、30分間、真空中で加熱することによって作製したフラーレンシエルチューブの透過電子顕微鏡 (TEM) 写真である。

図4は、フラーレンナノウィスカーを 600°C で、30分間、真空中で加熱することによって作製した内部に充填組織を持つフラーレンシエルチューブの透過電子顕微鏡 (TEM) 写真である。

発明を実施するための最良の形態

この出願の発明は上記のとおりの特徴をもつものであるが、以下にその実施の形態について説明する。

この出願の発明では、各種のフラーレンのウィスカーやファイバーを $500 \sim 1000^\circ\text{C}$ の温度範囲で熱処理することによりフラーレンシ

M) の写真である。写真に示されているようにフラーレンナノウィスカーから作製したフラーレンシェルチューブはナノメートルオーダーの直径を持ち、かつ、矢印で示されているように、元々のフラーレンナノウィスカーの晶癖面を反映して多角形の壁構造を持つものが存在することが確認される。なお、ここでいう晶癖とは結晶の大きさと形状の特徴のことである。

図2はフラーレンナノウィスカーを700℃で、30分間、真空中で加熱することによって作製したフラーレンシェルチューブ壁の透過電子顕微鏡(TEM)の写真である。透過電子顕微鏡写真からフラーレンシェルチューブ壁の厚みは約30nmの非晶質炭素であることが確認される。

また、図3はフラーレンシェルチューブ壁の透過電子顕微鏡(TEM)の写真である。

フラーレンシェルチューブは図3に示されているように端は閉じている場合があることも観察される。また、フラーレンシェルチューブの内部が図4に示されているように充填組織を持つものも観察される。シェルチューブ構造ができる途中として非晶質炭素が充填された状態であると推察される。

もちろん、この出願の発明は以上の実施形態および実施例に限定されるものではなく、詳細については様々な態様が可能である。

産業上の利用可能性

この出願の第1の発明のフラーレンシェルチューブの製造方法によれば、エネルギー、触媒、半導体産業における電界放射デバイス、ガスフィルター、水素吸蔵体、触媒担体など広範囲な用途での機能性材料として有用なフラーレンシェルチューブを得ることができる。

第2の発明のフラーレンシェルチューブの製造方法によれば、上記と同様な効果が得られ、さらに好適に使用できるフラーレンが選定できる。

第3の発明によれば、フラーレンシェルチューブを構成する炭素の壁の形態およびフラーレンシェルチューブ内部の態様が特定化された、特

有の大きさのフラーレンシエルチューブが提供される。

第4の発明によれば、上記と同様な効果が得られ、さらにフラーレンシエルチューブ壁の端部の構造が特定化されることになる。

この出願の発明で得られるフラーレンシエルチューブは、新しい機能性材料として、エネルギー、化学工業、電子・半導体等の各種産業における電界放射デバイス、ガスフィルター、水素吸蔵体、触媒担体など幅広い用途に有用となる。

請求の範囲

1. (補正後) フラーレンのウィスカーまたはファイバーを1 Paの真空中において500～1000℃の温度範囲で熱処理して、非晶質炭素壁を持ち内部が中空であるフラーレンシェルチューブとすることを特徴とするフラーレンシェルチューブの製造方法。
2. フラーレンがC₆₀ フラーレン、C₇₀ 以上の高次フラーレン、金属内包フラーレン、またはフラーレン誘導体であることを特徴とする請求項1のフラーレンシェルチューブの製造方法。
3. 直径が10 nm～100 μmの範囲、長さが100 nm以上であって、チューブ壁が非晶質炭素であり、内部が中空であることを特徴とするフラーレンシェルチューブ。
- 4.
5. チューブの端部が閉鎖または開口していることを特徴とする請求項3のフラーレンシェルチューブ。
- 6.